

METHOD FOR LAMINATING FILM FOR POLARIZING PLATE**Publication number:** JP3064703 (A)**Publication date:** 1991-03-20**Inventor(s):** MURAKAMI YUTAKA; KITaura KOICHI**Applicant(s):** TORAY INDUSTRIES**Classification:****- international:** **G02B5/30; B29C65/52; B32B7/12; G02B1/08; B29K29/00; B29L9/00; G02B5/30; B29C65/52; B32B7/12; G02B1/08;** (IPC1-7): B29C65/52; B29K29/00; B29L9/00; B32B7/12; G02B1/08; G02B5/30**- European:****Application number:** JP19890200975 19890802**Priority number(s):** JP19890200975 19890802**Abstract of JP 3064703 (A)**

PURPOSE:To improve adhesive strength, moisture and heat resistances by carrying out adhesion through a soln. of an adhesive contg. PVA having specified degrees of polymn. and saponification in the solid component under a specified pressure. **CONSTITUTION:**Polarizing films are adhered through a soln. of an adhesive at 35-90 deg.C under 3-30kg/cm² pressure. The adhesive contains >=60wt.% PVA having 1,500-4,000 degree of polymn. and 90-100mol% degree of saponification in the solid component. When the degree of polymn. of the PVA is <1,500, adhesive strength is not satisfactory and the moisture and heat resistances of the polarizing films are deteriorated. When the degree exceeds 4,000, coating viscosity is increased and stability of performance is not ensured. When the degree of saponification of the PVA is <90mol%, the moisture and heat resistances of the films are deteriorated and interlaminar exfoliation is caused at high temp. and humidity. When the amt. of the PVA is <60wt.%, transparency is lost and wet readhesion cannot be carried out. By this method, moisture and heat resistances and adhesive strength are remarkably improved.

Data supplied from the esp@cenet database — Worldwide

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A) 平3-64703

⑬ Int. Cl.⁵

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 平成3年(1991)3月20日

G 02 B 5/30
B 29 C 65/52
B 32 B 7/12
G 02 B 1/08
// B 29 K 29:00
B 29 L 9:00

7448-2H
2126-4F
6804-4F
8106-2H

4F

審査請求 未請求 請求項の数 3 (全6頁)

⑮ 発明の名称 偏光板用フィルムの積層方法

⑯ 特 願 平1-200975

⑰ 出 願 平1(1989)8月2日

⑱ 発 明 者 村 上 豊 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業
場内

⑲ 発 明 者 北 浦 好 一 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業
場内

⑳ 出 願 人 東 レ 株 式 会 社 東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号

明 細 書

1. 発明の名称

偏光板用フィルムの積層方法

2. 特許請求の範囲

(1) 基材フィルムであるポリビニルアルコール系フィルムの少なくとも片面に保護フィルムを接着剤層を介して積層する偏光板用フィルムの積層方法において、該接着剤固形分中に重合度1500~4000、ケン化度90~100 mol%のポリビニルアルコールを60wt%以上含有し、該接着剤の35~90℃の溶液を介して、3~30kg/cm²の圧力を加えて接着することを特徴とする偏光板用フィルムの積層方法。

(2) 基材フィルムであるポリビニルアルコール系フィルムの少なくとも片面に保護フィルムを接着剤層を介して積層する偏光板用フィルムの積層方法において、該接着剤固形分中に重合度1500~4000、ケン化度90~100 mol%のポリビニルアルコールを60wt%以上含有し、該接着剤を35~90℃の温度で膨潤させて、3~3

0kg/cm²の圧力を加えて接着することを特徴とする偏光板用フィルムの積層方法。

(3) 保護フィルムがセルロース系フィルムであることを特徴とする特許請求の範囲第(1)項または第(2)項記載の偏光板用フィルムの積層方法。

3. 発明の詳細な説明

[産業上の利用分野]

本発明は偏光板用フィルムの製造方法に関するものである。さらに詳しくは、接着力が強固で、耐湿熱性の良好な高品位の偏光板用フィルムの積層方法に関する。

[従来の技術]

偏光板は液晶表示板に組込まれ、デジタル時計、液晶テレビ、自動車用フロント計器板、デジタル式卓上計算機等の表示装置として広く使用されている。

かかる表示装置は、年々大型化する傾向があり、しかも、高温高湿度化等その使用環境もますます過酷な条件が要求されるようになってきており、その要求仕様を満足する偏光板の開発が急務とな

っている。

現在、上記用途に使用されている偏光板として二色性色素を吸着固定させたポリビニルアルコール系フィルムの両面に接着剤層を介して保護フィルムを積層した積層フィルム（偏光板用フィルム）の片面に、ポリアクリル酸系ポリマーからなる粘着剤層及び離型フィルムを有する構成のものが知られている。

基材フィルムであるポリビニルアルコール系フィルムと保護フィルムを貼り合わせる接着剤として、ポリビニルアルコール、部分ケン化ポリビニルアルコール、カルボキシメチルセルロース等の水溶性ポリマーによる接着剤や、ポリアクリル系接着剤、ポリウレタン系接着剤、エポキシ系接着剤などが提案されている。

〔発明が解決しようとする課題〕

しかし、ポリビニルアルコール、部分ケン化ポリビニルアルコール、カルボキシメチルセルロース等の水溶性接着剤では、耐水性がなく膨潤して接着力が小さくなり、耐湿熱性が劣る。また、ポ

リアクリル系、ポリウレタン系、エポキシ系接着剤を使用する場合は塗工粘度が高くなり、均一な厚みに塗布できないばかりか、接着加工の容易な再湿接着ができない欠点がある。

本発明はかかる問題点を改善し、大型液晶表示体の偏光板用フィルムに要求される良好な耐湿熱性と光学欠点の少ない高品位の偏光板用フィルムを容易に製造する積層方法を提案することにある。
〔課題を解決するための手段〕

上記目的を達成するため、鋭意研究した結果、本発明を完成するに至った。すなわち、本発明は、(1)基材フィルムであるポリビニルアルコール系フィルムの少なくとも片面に保護フィルムを接着剤層を介して積層する偏光板用フィルムの積層方法において、該接着剤固形分中に重合度1500～4000、ケン化度90～100 mol%のポリビニルアルコールを60 wt%以上含有し、該接着剤の35～90℃の溶液を介して、3～30 kg/cm²の圧力を加えて接着することとを特徴とする偏光板用フィルムの積層方法、(2)基材フィルムであるポ

リビニルアルコール系フィルムの少なくとも片面に保護フィルムを接着剤層を介して積層する偏光板用フィルムの積層方法において、該接着剤固形分中に重合度1500～4000、ケン化度90～100 mol%のポリビニルアルコールを60 wt%以上含有し、該接着剤を35～90℃の温度で膨潤させて、3～30 kg/cm²の圧力を加えて接着することとを特徴とする偏光板用フィルムの積層方法、とするものである。

本発明の積層方法において、偏光板用フィルムになった時に二色性色素を含むポリビニルアルコール系フィルム（以下、基材フィルムと称する）と保護フィルムの積層に用いられる接着剤としてのポリビニルアルコールの重合度は、1500～4000、好ましくは2000～3800である。重合度が1500未満では接着力が十分でなく、偏光フィルムの耐湿熱性が劣る。また、重合度が4000を越えると塗工粘度が高くなり、積層時にコーティング厚みが不均一となり、接着力にバラツキが出て性能安定性に欠ける。接着剤として

のポリビニルアルコールのケン化度は90～100 mol%の範囲が耐湿熱性および接着性の点で必要である。ケン化度が90 mol%未満では、耐湿熱性が低下し、高温高湿度下で偏光フィルムの層間剥離が起こる。接着剤固形分中には40 wt%未満の範囲で、ホウ酸、グリオキザール、メチロール尿素、活性ビニル化合物、エポキシ化合物、ポリカルボン酸、イソシアネート等の耐水化剤を含んでもよいが、上記ポリビニルアルコール成分が60 wt%未満になると透明性が失われてくるばかりか、再湿接着ができなくなるため、接着剤固形分中のポリビニルアルコール成分は60 wt%以上が必要である。

本発明では、上記接着剤の溶液温度、もしくは膨潤させる温度は35℃～90℃、好ましくは40℃～80℃である必要がある。該温度が35℃未満では基材フィルムと接着剤との界面の相溶性が悪く偏光板用フィルムの耐湿熱性に劣る。また、該温度が90℃を越えると、接着剤層間に気泡が発生しやすくなり、光学欠点を生じる。

接着時のラミネート圧力は、 $3 \sim 30 \text{ kg/cm}^2$ の範囲であれば、偏光板用フィルムの耐湿熱性が良好で、積層フィルム間の気泡数は少なく、積層加工に伴うラミネートロール表面キズのうつりなどの欠点発生もなく良好である。また、積層フィルムの変形を防止することができる。

次に本発明の偏光板用フィルムの積層方法について更に詳細に説明する。

まず、本発明において、基材フィルムとは、ポリビニルアルコール、ポリビニルホルマール、ポリビニルブチラール、ポリビニルアセタール、ポリ(エチレン-酢酸ビニル)共重合体からなるフィルムをいう。

これらのフィルムを 30°C から 180°C の温度範囲の湿熱あるいは乾熱下で通常の延伸方法で2～8倍に一軸方向へ延伸する。基材フィルムへの二色性色素の吸着は、基材フィルムを二色性色素を含む液体に10～200秒間浸漬処理して行なう。

偏光板用フィルム中の二色性色素としては、一

ついで述べる。

基材フィルムと保護フィルムの積層には一對以上のニップロールで加圧する装置が使用できる。保護フィルムと基材フィルムとの積層は二色性色素を含む液体中に浸漬処理前あるいは処理後のどちらであってもよい。

積層前の基材フィルムと保護フィルムの間に温度 $35 \sim 90^\circ\text{C}$ 、好ましくは濃度1～20wt%の接着剤溶液を滴下、あるいは噴霧状で付着せしめ、ラミネートロールを使用して $3 \sim 30 \text{ kg/cm}^2$ の圧力で、好ましくは $35 \sim 90^\circ\text{C}$ の温度でプレスした後 $40 \sim 120^\circ\text{C}$ で乾燥して、貼り合せることができる。接着剤溶液の溶媒は水あるいはアルコールおよびそれらの混合物が好ましい。

また、保護フィルム表面にあらかじめ、メタリングバー、グラビアロール、キスロール、噴霧器等を使って、接着剤溶液を $0.02 \sim 5 \mu\text{m}$ の厚みに塗布した後、乾燥形成した接着剤付きの保護フィルムを作製しておき、積層する際に該接着剤付きの保護フィルムと基材フィルムの間に温度3

軸配向の基材フィルム中で二色性を示すヨウ素や、アゾ系、アントラキノン系、ペリレン系、キノフタロン系、ナフトキノ系、テトラジンの二色性染料もしくは顔料が使用でき、またそれらが併用されていてもよい。

かくして、二色性色素を含む基材フィルムを得る。

保護フィルムは、透明性、引張強度に優れた樹脂フィルムが望ましい。例えば、トリアセチルセルロース(TAC)、ジアセチルセルロース(DAC)、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリエーテルスルホン(PES)、ポリカーボネート(PC)、ポリ酢酸ビニル(PVAc)等の樹脂フィルムが使用できる。

これらのうち、フィルム表面の50 mol%以上がケン化されたトリアセチルセルロース(TAC)、ジアセチルセルロース(DAC)からなるフィルムは、透明性が高く、機械的強度も優れ、基材フィルムとの接着力が高いため特に好ましい。

次に基材フィルムと保護フィルムの積層方法に

$5 \sim 90^\circ\text{C}$ に加温したポリビニルアルコール接着剤の溶媒を付着させながら接着剤を膨潤させて好ましくは $35 \sim 90^\circ\text{C}$ の温度で、 $3 \sim 30 \text{ kg/cm}^2$ の圧力を加えて再湿接着を行なってもよい。

以上2通りの積層方法があるが、どちらの方法でも、本発明で規定する接着剤層を介し、さらに、積層する際に特定の圧力を満足していなければならないことが重要である。

また、以上の2通りの積層方法は、基材フィルムの片面に積層する場合について述べたが、基材フィルムの両面に積層する場合も同様にして積層する。

[物性の測定並びに効果の評価方法]

本発明の物性値の測定方法並びに効果の評価方法は次の通りである。

(1) 耐湿熱性

偏光板用フィルムと厚み1mmのガラス板とを透過率90.8%のブチルアクリレート粘着剤で、貼り合せた試料について、分光光度計で波長領域 $400 \sim 700 \text{ nm}$ の範囲で波長10nm毎に、偏光

板用フィルム単体の平均透過率 (T) を求め、さらに2枚の偏光板用フィルムを偏光軸方向に平行に重ねた時の平均透過率 (T₁)、と偏光軸を直交に重ねた時の平均透過率 (T₂) を測定して下記の計算式から偏光度 (V) を求めた。

$$\text{偏光度 (V)} = \sqrt{\frac{T_1 - T_2}{T_1 + T_2}} \times 100\%$$

T₁ : 2枚の偏光板用フィルムの偏光軸を平行に配置した時の平均透過率 (%)

T₂ : 2枚の偏光板用フィルムの偏光軸を直交に配置した時の平均透過率 (%)

偏光板用フィルムの耐湿熱性は、ガラス板と貼り合せた偏光板用フィルムを60℃、90%RHの恒温恒湿槽に入れ、300時間経過後に透過率、偏光度を分光光度計で測定し、テスト前の初期透過率、初期偏光度の差として、それぞれΔY、ΔVで表わした。ΔY、ΔVの値が小さいほど、耐湿熱性は良好である。

(2) 乾接着力

基材フィルムと保護フィルムからなる積層品の

評価した。当然のことながら剥離時間が長いほど良好である。

(4) 外観品位

基材フィルムと保護フィルムからなる積層品の外観品位を次の基準で判定した。

◎ : 外観品位に優れる。(積層品1㎡あたりに存在する大きさ0.2mm以上の気泡、押しキズ、ヘコミなどの点状欠点が5個未満で、かつ透明性が極めて良好。)

○ : 外観品位が良好である。(積層品1㎡あたりに存在する上記の点状欠点が5個以上20個未満でかつ透明性が良く満足できる。)

△ : 外観品位に劣る。(積層品1㎡あたりに存在する上記の点状欠点が20個以上100個未満、もしくは透明性が不良で実用上問題がある。)

× : 外観品位が劣悪である。(積層品1㎡あたりに存在する上記の点状欠点が100個以上、もしくは透明性が極めて不良で実用に耐えない。)

一端を50℃の水中に浸漬剥離させたのち、乾燥し、再び20℃で65%RHの室内で定速移動型引張試験機を使って剥離したフィルムの両端の剥離力をフィルム幅25mmあたりで求め、乾接着力を次の基準で判定した。

◎ : 乾接着力が極めて大きく、優れる。(フィルムが剥離せずに切断)

○ : 乾接着力が大きく、良好である。(剥離力が3kgを超える。)

△ : 乾接着力が小さく、劣る。(剥離力が1~3kg)

× : 乾接着力が極めて小さく、使用不可。(剥離力が1kg未満)

(3) 湿潤剥離

基材フィルムと保護フィルムの積層サンプルを幅25mm、長さ170mmに切断し、一端を剥離させて、片方のフィルム端部に荷重(15g)をつり下げ、フィルムの他方の端部をもって、40℃の温水に浸漬した時点から、接着面が完全に剥離するまでの時間(秒)を測定して、湿潤接着力を

[実施例]

本発明を実施例に基づいて説明する。

実施例1~3

厚み75.μmのポリビニルアルコールフィルム(クラレ製#7500)をヨウ素0.1wt%、ヨウ化カリウム0.2wt%、ホウ酸4.0wt%を含む35℃の水溶液中に浸漬処理したのち、ホウ酸4.0wt%を含む40℃水溶液中でフィルム走行方向に3.8倍延伸し、さらに水洗したのち、50℃で乾燥してポリビニルアルコールの基材フィルムを得た。引続き重合度とケン化度がそれぞれ1500/98.9 mol%、2000/99.9 mol%、3800/99.0 mol%のポリビニルアルコール樹脂を温水で10wt%の濃度に溶解し、温度50℃に調整した接着剤溶液を、該基材フィルムと厚み80μmのトリアセチルセルロースフィルムの間に、滴下拡散させながらラミネートロール間で10kg/㎠の圧力で圧着したのち60℃で乾燥して基材フィルムと保護フィルムが積層された実施例1~3の偏光板用フィルムを得た。

比較例 1・2

実施例 1 において接着剤として使用するポリビニルアルコールの重合度とケン化度をそれぞれ 1200/99.2 mol%、5100/99.2 mol%とした以外は実施例 1 と同一条件で製造し、比較例 1～2 の偏光板用フィルムを得た。

実施例 4～6

厚み 75 μ m のポリビニルアルコールフィルム (クラレ製 #7500) を遅駆動ロールと速駆動ロールの間に 140℃ の加熱ロールを配置したロール式縦延伸機で 4.0 倍に延伸し、ポリビニルアルコールの一軸配向フィルムを得た。一方、重合度が 3500 でケン化度が 90.2 mol%、97.5 mol%、99.9 mol% のポリビニルアルコール樹脂を温水で濃度 2 wt%、温度 50℃ に調合した溶液を厚さ 80 μ m のトリアセチルセルロースフィルムの片側表面にグラビアコートで付着させたのち、乾燥して接着剤層をもつトリアセチルセルロースフィルムを得た。先に得られたポリビニルアルコールの一軸配向フィルムと接着剤

層を得た。

比較例 4・5

実施例 7 において塗布前の接着剤溶液温度を 26℃、98℃ とした以外は実施例 7 と同一条件で製造し、比較例 4 と 5 の偏光板用フィルムを得た。

実施例 10～12

実施例 3 において、接着剤塗布後のポリビニルアルコールフィルムとトリアセチルセルロースフィルムのラミネートロールによる接着圧力を 5 kg/cm²、18 kg/cm²、30 kg/cm² とした以外は実施例 3 と同一条件で製造し、実施例 10～12 の偏光板用フィルムを得た。

比較例 6・7

実施例 10 において、接着剤として使用するポリビニルアルコールの重合度とケン化度をそれぞれ 3500、97.5 wt% とし、接着圧力を 1 kg/cm²、33 kg/cm² とした以外は実施例 10 と同一条件で製造し、比較例 6 と 7 の偏光板用フィルムを得た。

実施例 13・14

層を有するトリアセチルセルロースを接着剤層が接合面にくるように配置し、ポリビニルアルコール接着剤層に 50℃ の水を付加し接着剤層を膨潤させながらラミネートロールを使って 10 kg/cm² で加圧接着してポリビニルアルコールフィルムとトリアセチルセルロースフィルムの積層品を得た。この積層フィルムをヨウ素 0.1 wt%、ヨウ化カリウム 0.2 wt%、ホウ酸 4.0 wt% を含む 35℃ の水溶液中に浸漬処理したのち乾燥して実施例 4～6 の偏光板用フィルムを得た。

比較例 3

実施例 4 において接着剤として使用するポリビニルアルコール樹脂のケン化度を 86.9 mol% とした以外は実施例 4 と同一条件で製造した。

実施例 7～9

実施例 1 において接着剤として使用するポリビニルアルコールの重合度を 3800、ケン化度を 99.9 mol% とし、塗布前の接着剤溶液温度を 35℃、60℃、90℃ とした以外は実施例 1 と同一条件で製造し、実施例 7～9 の偏光板用フィ

実施例 1 において、接着剤として使用するポリビニルアルコールの重合度を 3500 とし、接着剤組成をポリビニルアルコール/メチロール尿素有 60 wt%/40 wt%、80 wt%/20 wt% とした以外は実施例 1 と同一条件で製造し、実施例 13 と 14 の偏光板用フィルムを得た。

比較例 8

実施例 13 において、接着剤組成がポリビニルアルコール 45 wt% とメチロール尿素が 55 wt% である以外は実施例 13 と同一条件で製造した。

第 1 表から明らかなように本発明方法で製造された偏光板用フィルムは耐湿熱性と外観品位が共に優れていることがわかる。

[発明の効果]

本発明は、基材フィルムと保護フィルムをラミネートする工程において、重合度 1500～4000、ケン化度 90～100 mol% のポリビニルアルコール成分を接着剤固形分中に少なくとも 60 wt% 以上含む接着剤層を介して特定の圧力下で接着することによって、耐湿熱性および接着力の

著しい向上と光学欠点の少ない優れた品位を付与
 することができることから、大型液晶表示体等の
 信頼性が、大幅に高められる。

第 1 表

^{a)} 接着剤固形分中のポリビニルアルコール(PVA)の割合

実 験 №	接着剤としてのPVA			接着剤の溶液 温度もしくは 膨潤温度 (℃)	接 着 圧 力 (kg/cm ²)	偏 光 板 用 フ ィ ル ム 性 能				
	固 合 度	ケン化度 (mol%)	PVA 成分 ^{a)} (wt%)			耐 湿 熱 性		乾接着力	湿潤剥離 (秒)	外観品位
						偏光度変化(ΔT) (%)	透過率変化(ΔT) (%)			
実施例 1	1500	98.9	100	50	10	5.63	6.32	○	74	○
2	2000	99.9	100	50	10	3.34	4.27	○	97	○
3	3800	99.0	100	50	10	0.93	1.56	◎	131	○
実施例 4	3500	90.2	100	50	10	3.38	4.41	◎	86	◎
5	3500	97.5	100	50	10	1.23	2.25	○	127	◎
6	3500	99.9	100	50	10	0.97	1.74	○	128	◎
実施例 7	3800	99.9	100	35	10	1.03	1.58	○	97	○
8	3800	99.9	100	60	10	0.66	1.12	○	136	○
9	3800	99.9	100	90	10	0.59	0.85	○	152	◎
実施例 10	3800	99.0	100	50	5	2.26	3.45	○	87	○
11	3800	99.0	100	50	18	0.94	1.53	○	122	◎
12	3800	99.0	100	50	30	0.90	1.51	○	130	○
実施例 13	3500	98.9	80	50	10	4.32	5.34	○	67	○
14	3500	98.9	80	50	10	2.23	3.08	○	92	◎
比較例 1	1200	99.2	100	50	10	13.47	15.07	△	41	○
2	5100	99.2	100	50	10	10.95	11.43	○	36	×
比較例 3	3500	86.9	100	50	10	11.91	12.97	◎	10	○
比較例 4	3800	99.9	100	26	10	9.78	10.11	○	49	△
5	3800	99.9	100	98	10	0.92	0.59	○	134	×
比較例 6	3500	97.5	100	50	1	21.54	23.76	○	18	△
7	3500	97.5	100	50	33	1.66	4.89	○	117	×
比較例 8	3500	98.9	45	50	10	12.31	15.12	○	46	×

特許出願人 東レ株式会社